

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-099213

(43)Date of publication of application : 15.04.1997

(51)Int.Cl.

B01D 53/56

B01D 53/74

B01D 53/32

B01D 53/34

(21)Application number : 07-282603

(71)Applicant : SEKIYU SANGYO KASSEIKA
CENTER

(22)Date of filing : 04.10.1995

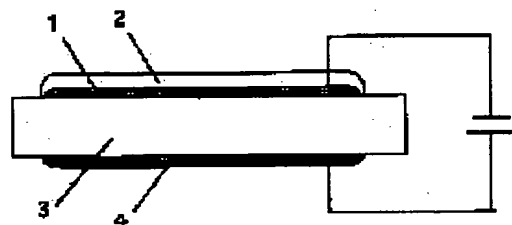
(72)Inventor : OZEKI YUJI
NAKATANI NIRO
IWAYAMA KAZUYOSHI

(54) ELEMENT FOR PURIFYING WASTE GAS AND PURIFYING METHOD OF NITROGEN OXIDES

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To efficiently remove nitrogen oxides with a small quantity of current by forming from electrodes containing any one of metal oxides, silver, gold or palladium and a solid electrolyte having oxide ion conductivity.

SOLUTION: This element for purifying a waste gas is formed from the electrodes containing any one of metal oxides, gold or palladium and the solid electrode having oxide ion conductivity. And at least one of the electrode 2, 4 on both surfaces of the solid electrolyte 3, e.g. a stabilized zirconia, contains any one of silver, gold or palladium. Further, a gas containing nitrogen oxides is passed through the electrode side covered with a layer 1 containing a perovskite type multiple metal oxide, e.g. CaTiO_3 , and voltage is applied so that the electrode becomes a cathodic electrode 2. As a result, the decomposition and removal of nitrogen oxides is accelerated by decomposing nitrogen oxides on the electrodes 2, 4, ionizing the generated oxygen and moving the ionized oxygen to the counter electrode side through the solid electrolyte 3.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-99213

(43) 公開日 平成9年(1997)4月15日

(51) Int. Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 0 1 D 53/56			B 0 1 D 53/34	1 2 9 C
53/74			53/32	
53/32			53/34	Z A B
53/34	Z A B			

審査請求 未請求 請求項の数10 F D (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平7-282603

(22) 出願日 平成7年(1995)10月4日

(71) 出願人 590000455

財団法人石油産業活性化センター
東京都港区虎ノ門四丁目3番9号

(72) 発明者 尾関 雄治

愛知県名古屋市港区大江町9番地1号 東
レ株式会社名古屋事業場内

(72) 発明者 中谷 仁郎

愛知県名古屋市港区大江町9番地1号 東
レ株式会社名古屋事業場内

(72) 発明者 岩山 一由

愛知県名古屋市港区大江町9番地1号 東
レ株式会社名古屋事業場内

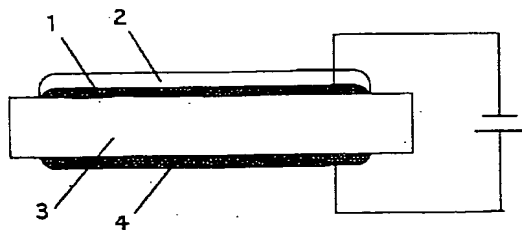
(74) 代理人 弁理士 伴 俊光

(54) 【発明の名称】 排ガス浄化用素子および窒素酸化物の浄化方法

(57) 【要約】

【課題】 酸素を含む排ガスから窒素酸化物を少ない電流量で効率よく除去する。

【解決手段】 (a) 金属酸化物、(b) 銀、金またはパラジウムのいずれかを含む電極、および(c) 酸素イオン導電性を有する固体電解質からなる排ガス浄化用素子に窒素酸化物を含む排ガスを接触させる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) 金属酸化物、(b) 銀、金またはパラジウムのいずれかを含む電極、および(c) 酸素イオン導電性を有する固体電解質からなる排ガス浄化用素子。

【請求項2】 酸素イオン導電性を有する固体電解質の両面に電極を持ち、少なくとも一方の電極が銀、金、またはパラジウムのいずれかを含み、かつ金属酸化物を含む層で覆われていることを特徴とする請求項1記載の排ガス浄化用素子。

【請求項3】 (a) 金属酸化物が、ペロブスカイト型複合酸化物であることを特徴とする請求項1または2記載の排ガス浄化用素子。

【請求項4】 (a) 金属酸化物が $La_{1-x}Sr_xCoO_{3-z}$ ($0 \leq x \leq 1.0$, かつ $0.1 \leq z \leq 0.5$) の組成で表されることを特徴とする請求項3記載の排ガス浄化用素子。

【請求項5】 (b) 電極の少なくとも一方がパラジウムを含む電極であることを特徴とする請求項1~4のいずれか1項記載の排ガス浄化用素子。

【請求項6】 (b) パラジウムを含む電極が平面的な網目構造を有することを特徴とする請求項5記載の排ガス浄化用素子。

【請求項7】 (b) パラジウムを含む電極が900℃以上の温度で熱処理を施すことにより平面的な網目構造を有することを特徴とする請求項6記載の排ガス浄化用素子。

【請求項8】 (c) 酸素イオン導電性を有する固体電解質が安定化ジルコニアであることを特徴とする請求項1~7のいずれか1項記載の排ガス浄化用素子。

【請求項9】 (c) 酸素イオン導電性を有する固体電解質が筒状の形状を有することを特徴とする請求項1~8のいずれか1項記載の排ガス浄化用素子。

【請求項10】 酸素イオン導電性を有する固体電解質の両面に電極を持ち、少なくとも一方の電極が銀、金またはパラジウムのいずれかを含み、かつ金属酸化物で覆われた排ガス浄化用素子の、金属酸化物で覆われた電極側に窒素酸化物を含むガスを流通させ、該電極がカソード電極となるように電圧を印可することを特徴とする窒素酸化物の浄化方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は排ガス浄化装置および窒素酸化物の浄化方法、さらに詳しくは、酸素を含む燃焼ガスから大気汚染物質である窒素酸化物を効率的に浄化する方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 環境保全の観点から、大気汚染物質の浄化は大きな社会的な課題である。とりわけ産業活動の拡大に伴う燃焼排ガスの浄化は現在緊急の課題である。

【0003】 固定発生源である工場や移動発生源である自動車から排出される燃焼排ガス中に含まれる窒素酸化物は、光化学スモッグの原因といわれ、また人体に有害なガスである。特に一酸化窒素(NO)は浄化が難しく、最も重要な検討課題となっている。これまでも燃焼排ガス中の窒素酸化物を浄化するいくつかの方法が提案されている。例えばアンモニア等の還元剤を用いて触媒上で窒素酸化物を窒素と水にして分解する方法である。しかしながら、この方法は還元剤を用いるためコストの点で高くつき、また還元剤の保管に関する安全性や未反応還元剤の回収漏れの対策が必要となる。このようなことからこの方法は規模が大きな固定発生源については有効であるが、自動車のような移動発生源には適さない。これまで理論空燃比付近で運転されるガソリンエンジンの排ガスの浄化には貴金属系成分を活性成分とする三元触媒装置が一般に使用されている。しかしながらこれらの触媒装置は過剰な酸素共存下では窒素酸化物を浄化できないのでディーゼルエンジンや希薄燃焼方式のガソリンエンジンの排ガス処理には用いることができない。最近、炭化水素を還元剤として用いて新たな触媒装置で除去する方法が提案されているが、炭化水素の窒素酸化物還元効率が高いことおよび触媒の耐久性が十分でないことなどの多くの問題を抱えている。このため新しい除去方法の開発が望まれている。

【0004】 ところで還元剤を用いずに一酸化窒素を直接窒素と酸素に分解する方法は排ガスを処理装置に通じるだけで済み、理想的な処理方法である。しかし、これまで提案されている触媒を用いた方法では窒素酸化物の分解により生成した酸素が触媒表面から脱離しないために、失活していた。近年、酸素イオン導電性を有する固体電解質からなる素子を用いて窒素酸化物を電気化学的に分解除去する方法が Journal of Electrochemical Society, 122, 896, (1975) に開示されている。すなわち酸化スカルジウム安定化ジルコニアの両側に多孔質の白金電極を被覆し、その一方側に酸素を含まない窒素酸化物を含有するガスを供給するとともに、この電極がカソード極になるように両電極に直流電圧を印加する。これにより電極上で窒素酸化物を窒素と酸素に分解し、生成した酸素をイオン化し、これを印加電圧を駆動力としてこの電極上から固体電解質を通して対極側に移動させ、反応系から排除する。(この際、酸素イオンが固体電解質中を流れることにより、素子内に電流が流れ、電気エネルギーが消費される) この結果、窒素酸化物の分解を促進させることができることを示している。

【0005】 しかしながら上記方法では燃焼排ガスのように過剰の酸素が含まれている場合、上記素子では窒素酸化物の分解反応は進行せず、過剰に共存している酸素のみがイオン化し、固体電解質中を流れてしまう課題があった。

【0006】 最近、Chemistry Letters P.927(1994) に

700℃で固体電解質の両側に多孔質のバラジウム電極を形成させた素子を用いると酸素共存下でも窒素酸化物の分解除去ができることが開示された。しかしながら窒素酸化物を分解除去するには電流密度500mA/cm²以上の大きな電流を通電する必要があった。すなわち上記素子では窒素酸化物の分解除去は酸素過剰下でも可能であるが、分解反応とは関係ない排ガスに過剰に含まれる共存酸素が同時に固体電解質中をイオン化して流れてしまうため、窒素酸化物を分解するには多量の電流を流す必要があった。つまり素子中を流れる電流量に対する窒素酸化物の分解除去効率は極めて低いものであった。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】従って酸素過剰存在下でも効率よく窒素酸化物を分解できる装置の開発が望まれている。すなわち本発明の目的は酸素共存下で窒素酸化物分解反応を進行させ、分解生成した酸素をイオン化して固体電解質中を透過させるとともに、共存する酸素の透過を抑制することで、少ない電流量で効率よく除去できる排ガス浄化用素子および窒素酸化物の浄化方法を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明は前記課題を解決するためのものであり、本発明者らは(a)金属酸化物、(b)銀、金またはバラジウムのいずれかを含む電極、および(c)酸素イオン導電性を有する固体電解質からなる排ガス浄化用素子を用い金属酸化物を含む電極側がカソード極になるように直流電圧を印加すると酸素を含む排ガス中の窒素酸化物を少ない電流量で効率よく除去できることを見いだした。

【0009】すなわち本発明は(a)金属酸化物、

(b)銀、金またはバラジウムのいずれかを含む電極、および(c)酸素イオン導電性を有する固体電解質からなる排ガス浄化用素子に関するものであり、さらには酸素イオン伝導性を有する固体電解質の両面に電極を持ち、少なくとも一方の電極が銀、金またはバラジウムのいずれかを含み、かつ金属酸化物で覆われた排ガス浄化用素子の、金属酸化物を含む層で覆われた電極側に窒素酸化物を含むガスを流通させ、該電極がカソード電極となるように電圧を印可することとを特徴とする窒素酸化物の浄化方法に関するものである。

【0010】上記の構成により、電極上で窒素酸化物を窒素と酸素に分解し、生成した酸素をイオン化し、印加電圧を駆動力として固体電解質を通してこれを対極側へ移動させ、反応系から排除することで窒素酸化物に分解除去を促進させることを特徴とするものである。

【0011】

【発明の実施の形態】本発明で用いる酸素イオン導電性を有する固体電解質は特に限定されない。酸素イオン導電性を有する固体電解質の例としては蛍石型構造を有す

る金属酸化物で、安定化ジルコニア、安定化酸化ビスマスおよび安定化セリアが挙げられる。これらのうち高い導電性と強度を有することが好ましく、特に高い強度を有する安定化ジルコニアが好ましく用いられる。安定化ジルコニアとしては

(a) イットリア安定化ジルコニア (但し、ジルコニア濃度: 8~15モル%)

(b) 酸化カルシウム安定化ジルコニア (但し、酸化カルシウム濃度: 5~10モル%)

10 (c) 酸化マグネシウム安定化ジルコニア (但し、酸化マグネシウム濃度: 5~10モル%)

(d) 酸化セリウム安定化ジルコニア (但し、酸化セリウム濃度: 15~35モル%)

があるが特に限定されない。

【0012】固体電解質の形状は特に限定されないが、通常、板状、管状、あるいはハニカム状に成型されて用いられるが、その厚みは強度および導電性の点から1μm~5mmで、好ましくは10μmから2mmである。1μm以下の厚みでは十分な強度のあるものが得られず、一方5mm以上の厚みでは酸素の移動速度が遅くなってしまう。

【0013】形状としては管状が好ましく用いられる。管の直径、長さは特に限定されない。また、管の断面の形状も円形、だ円形、多角形、星型など特に限定されない。複数の管を束ねて用いることも可能である。さらに管の外側、内側のいずれにバラジウムを含み、かつ平面的な網目構造を有する電極を形成することも可能である。したがって、排ガスを流通させるのは管の外側であっても内側であってもかまわない。

30 【0014】これらの製造方法を以下に述べる。まず所定の濃度のイットリア、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、あるいは酸化セリウム安定化剤を含むジルコニア粉末を粉末混合法、中和共沈法、加水分解法、熱分解法、水熱分解法、あるいはアルコキシド法などのいずれかにより調製する。この安定化ジルコニア粉末をプレス成型、あるいは押し出し成型により目的の形状を得る。但し、成型を容易にするために有機系のバインダーあるいはさらに水を加えて良く混合してから成型を行ってもよい。成型体はバインダーを脱脂後、例えば1400~1600℃にて2~3時間焼成することにより、気孔の無い緻密な焼結体を得ることができる。

【0015】本発明の素子は、カソード電極およびアノード電極となる2つの電極を持つ。このうち、カソード電極となる電極は銀、金、またはバラジウムの少なくとも一つを含む。アノード電極となる電極は固体電解質を透過してきた酸素イオンから電子を受容し、気体酸素分子として気相へ拡散させることのできるものであれば特に限定されないが、電子受容効率および導電性が高く、高温でも耐久性を有するものが好ましく、例えば、金、白金、銀、バラジウム、銅、ニッケル等の少なくとも一

種以上の金属電極、あるいは合金電極が挙げられる。これらの電極形成法は特に限定されるものではなく、電極材をペースト状にして塗布する方法、スパッタリング法、メッキ法あるいは真空蒸着法が挙げられる。

【0016】一方、本発明の素子のカソード電極は、銀、金、またはパラジウムの少なくとも一つを含み、その形態は特に限定されない。電極形態の例として、平面的な網目構造を持つパラジウム電極が好ましく用いられる。本発明でいう平面的な網目構造とは電極部を走査型電子顕微鏡で1,000～5,000倍で観察されるように、電極を形成する電極材の粒子が固体電解質の表面に沿って凝集することにより、二次元的に網目状につながった構造をいう。

【0017】これら電極は電極材をペースト状にして塗布する方法、スパッタリング法、メッキ法あるいは真空蒸着法などにより塗布され形成されるが、電極形成法は特に限定されるものではない。例えばペーストで塗布する場合、均一にコーティングするためにテルビレオール等の溶剤にペーストを分散させてから用いてもよい。

【0018】平面的な網目構造をもつ電極形態のパラジウム電極の作製法はパラジウムペーストで固体電解質に塗布した後、800℃以上の高温で焼き付けるか、あるいはスパッタリング、真空蒸着、メッキ等でパラジウム電極部を形成した後、800℃以上で処理をするなどの方法が挙げられるが特に限定されるものではない。

【0019】本発明の素子は、さらに金属酸化物を含む点特徴である。本発明で用いる酸化物として、単元素金属酸化物、スピネル型複合酸化物、ペロブスカイト型複合酸化物が挙げられるが特に限定されるものではない。例えば、好ましく用いられるペロブスカイト型複合酸化物とは、化学式 RMX_3 で表され（一般的にRおよびMは金属原子、Xは酸素原子を表す）、その構造は、立方体の各頂点にR、立方体の中心にM、および立方体の各面の中心にXをとる。RとXのみでは面心立方格子、MとXのみでは単純立方格子となる。RおよびMはそれぞれ他の元素で置換可能である。RまたはMがそれぞれ価数の異なる元素で置換されると、価数を補うためにXの一部が格子から外れ欠陥を生じ、様々な化学的性質を示す。これらの元素の置換量を変えることで、化学的性質が制御可能となる。本発明に用いるペロブスカイト型複合酸化物としては、高温安定性が高いものが好んで用いられる。例えば、 $CaTiO_3$ 、 $LaCoO_3$ 、 $SrFeO_3$ 、およびこれらの置換誘導体が挙げられるが、特に限定されるものではない。例えば $La_{1-x}Sr_xCoO_{3-z}$ （ $0 \leq x \leq 1.0$ 、 $0.1 \leq z \leq 0.5$ ）の組成で表される複合酸化物が好ましく用いられる。

【0020】これら酸化物部分の製造法にはいろいろな方法があるが酸化物が電極表面に均一に分散する方法が好ましい。すなわち、

(1) 酸化物粉末をテレピン油に混ぜスラリー状にし、

これを電極に塗り付けた後に焼成する方法

(2) 金属元素比が目的の酸化物と同じになるように調整した各金属塩を含む溶液を電極に塗り付けた後に焼成する方法

(3) 金属元素比が目的の酸化物と同じになるように調整した各金属アルコキシドを含む溶液を電極に塗り付けた後に焼成する方法

(4) 金属元素比が目的の酸化物と同じになるように調整した各金属アルコキシドを含む溶液を金属ペーストに混ぜ、これを電極に塗り付けた後に焼成する方法

(5) 酸化物粉末をテレピン油に混ぜスラリー状にし、これを金属ペーストに混ぜ、これを電極に塗り付けた後に焼成する方法

があるが特に限定されない。本発明では(3)、(4)の方法が好ましく用いられる。

【0021】本発明の素子の構造として、板状の固体電解質の両面に金属電極を持つもの、管状固体電解質の外側と内側に金属電極を持つもの、あるいはハニカム状に成型された固体電解質に金属両電極を含むもののそれぞれの電極の一部または全てが金属酸化物を含む層で覆われたものが挙げられるが特に限定されるものではない。本発明の素子の好ましい構造は、固体電解質の両面にそれぞれカソード電極、アノード電極となる電極を有し、カソード電極が金属酸化物を含む層によって覆われた構造である。金属酸化物を含む層は、実質的に金属酸化物のみからなる層であってもよいし、たとえば貴金属などと金属酸化物からなる層であってもよい。この構造は作用電極上に金属酸化物層があることで、電極での一酸化窒素、酸素分解反応の一酸化窒素選択性を促進しようとするものである。

【0022】本発明の処理方法は該素子の両電極間に直流電圧が印加できるように電源に接続し、金属酸化物で覆われた電極側に酸素と窒素酸化物を含有する排ガスを流通させ、該電極がカソード電極になるように両電極間に直流電圧を印加することにより窒素酸化物を窒素と酸素に分解し、生成した酸素を電源より印加した電圧を駆動力として該電極上から固体電解質を通してアノード電極側に移動させ、アノード電極から酸素分子として気相へ排出されるものである。これにより窒素酸化物の分解を促進しようとするものである。

【0023】印加する電圧の範囲はジルコニアの厚みに対して1.0～7.0V/mmが好ましく、さらに好ましくは2.0～5.0V/mmである。印加電圧が1.0V/mmより低い場合は酸素の移動が遅すぎて窒素酸化物の分解反応が十分進行しない。一方、7.0V/mmより高くなると気相からの酸素の拡散が追いつかず、代わりに固体電解質自身の酸素が移動してしまい、最後には固体電解質が破壊されることがある。

【0024】反応温度の範囲は300～1200℃で、好ましくは500～1000℃である。300℃より低

温では窒素酸化物の分解反応の速度が遅く、しかも固体電解質中の酸素移動速度も極めて小さいため、十分な窒素酸化物の分解除去は行えない。一方、 1200°C を越えると $\text{N}_2 + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{NO}$ の逆反応が起こり易くなり、電極で生成した窒素が再び酸素と反応して窒素酸化物に戻ってしまう。

【0025】

【実施例】以下実施例にしたがって説明する。

実施例1

(固体電解質の管作製) $8\text{mol}\%$ イットリア添加の安定化ジルコニア粉末に有機系バインダーおよび蒸留水を添加し十分混合後、混練り成型機を用いて管状に押し出した。これを乾燥後、 1600°C で2時間焼成することで、外径 3.8mm 、内径 2.5mm 、長さ 240mm の緻密な安定化ジルコニア焼結体管(以下、ジルコニア管)を得た。

【0026】(電極の形成) ジルコニア管の中央部の外周 25mm の長さにパラジウムペースト(徳力化学研究所製シルベストNo.1)を均一に筆塗りし、カソード電極(電極面積 3cm^2)を形成した。次に、カソード電極

に対極するように内側に同じパラジウムペーストを用いてアノード電極を形成した。これを 1300°C の電気炉で2時間焼成することにより平面的な網目構造のパラジウム電極を有する素子を作製した。

【0027】(金属酸化物の形成) 次に、ランタン、ストロンチウム、コバルトの各アルコキシドを $0.8:0.2:1.0$ (モル比)の比率でイソプロパノール/ジェタノールアミン(11/1(重量比))混合溶媒に

コバルト $1.0\text{mol}/\text{kg}$ となるように溶かしたものを、カソード電極上に均一に筆塗りした。これを 950°C の電気炉で2時間焼成することで金属酸化物層を作成した。ここで形成された金属酸化物の構造は $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_{3-z}$ で表されるペロブスカイト型複合酸化物であることを、X線結晶構造解析により確認した。

【0028】(窒素酸化物の浄化テスト) その後、図1に示すように、両方の電極2、4に白金線をリード線として固定し、直流電源に接続した。カソード電極2側(固体電解質3の管の外側)に一酸化窒素 1000ppm 、酸素 2% 、ヘリウムバランスのモデルガス $50\text{ml}/\text{min}$ を流し、アノード電極4側(管の内側)にはヘリウム $50\text{ml}/\text{min}$ を流した。そして、素子中の電流密度が単位電極面積あたり $43.9\text{mA}/\text{cm}^2$ となるように直流電圧を印加した。なお性能評価は反応温度 700°C で行い、アノード電極側から出てきたガス中に存在する窒素の量をガスクロマトグラフィーを用いて分析し、窒素酸化物が窒素に転化した割合を窒素酸化物の除去率として求めた。この評価結果を表1に示す。なお、図1において、1は金属酸化物を含む層を表している。

【0029】実施例2

実施例1と同様に作成したジルコニア管に、実施例1と同様の電極を形成した。次に、ランタン、ストロンチウム、コバルトの各アルコキシドを $0.8:0.2:1.0$ (モル比)の比率でイソプロパノール/ジェタノールアミン(11/1(重量比))混合溶媒にコバルト $1.0\text{mol}/\text{kg}$ となるように溶かしたものと、パラジウムペーストをパラジウム:コバルト $=20:1$ (モル比)となるように混合し、カソード電極上に均一に筆塗りした。これを 950°C の電気炉で2時間焼成することで金属酸化物層を作成した。ここで形成された金属酸化物を含む層は、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_{3-z}$ で表されるペロブスカイト型複合酸化物が、金属パラジウムに分散した構造であることをX線結晶構造解析により確認した。この素子を用いて、実施例1と同様に窒素酸化物の浄化テストを行った。結果を表1に示す。

【0030】実施例3

実施例1と同様に作成したジルコニア管に、実施例1と同様の電極を形成した。次に、ランタン、ストロンチウム、コバルトの各アルコキシドを $0.8:0.2:1.0$ (モル比)の比率でイソプロパノール/ジェタノールアミン(11/1(重量比))混合溶媒にコバルト $1.0\text{mol}/\text{kg}$ となるように溶かしたものと、パラジウムペーストをパラジウム:コバルト $=10:1$ (モル比)となるように混合し、カソード電極上に均一に筆塗りした。これを 950°C の電気炉で2時間焼成することで金属酸化物層を作成した。ここで形成された金属酸化物を含む層は、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_{3-z}$ で表されるペロブスカイト型複合酸化物が、金属パラジウムに分散した構造であることをX線結晶構造解析により確認した。この素子を用いて、実施例1と同様に窒素酸化物の浄化テストを行った。結果を表1に示す。

【0031】実施例4

実施例1と同様に作成したジルコニア管に、実施例1と同様の電極を形成した。次に、ランタン、ストロンチウム、コバルトの各アルコキシドを $0.4:0.6:1.0$ (モル比)の比率でイソプロパノール/ジェタノールアミン(11/1(重量比))混合溶媒にコバルト $1.0\text{mol}/\text{kg}$ となるように溶かしたものと、パラジウムペーストをパラジウム:コバルト $=20:1$ (モル比)となるように混合し、カソード電極上に均一に筆塗りした。これを 950°C の電気炉で2時間焼成することで金属酸化物層を作成した。ここで形成された金属酸化物を含む層は、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_{3-z}$ で表されるペロブスカイト型複合酸化物が、金属パラジウムに分散した構造であることをX線結晶構造解析により確認した。この素子を用いて、実施例1と同様に窒素酸化物の浄化テストを行った。結果を表1に示す。

【0032】比較例1

実施例1と同様に作成したジルコニア管に、実施例1と同様の電極を形成した。これに金属酸化物の層を形成す

ることなく、実施例1と同様に窒素酸化物の浄化テストを行った。結果を表1に示す。

【0033】比較例2

実施例1と同様に作成したジルコニア管に、パラジウムペーストを白金ペーストに変えた他は実施例1と同様にカソード電極およびアノード電極を形成した。さらに、実施例1と同様の方法で金属酸化物層を形成し、実施例1と同様の方法で窒素酸化物の浄化テストを行った。結果を表1に示す。

【0034】

【表1】

	一酸化窒素除去率 (%)
実施例1	40
実施例2	45
実施例3	40
実施例4	45
比較例1	25
比較例2	0

*【0035】

【発明の効果】本発明の素子を用いれば過剰の酸素を含む燃焼等の排ガスから窒素酸化物を効率よく除去できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の排ガス浄化用素子の1例を示す略図である。

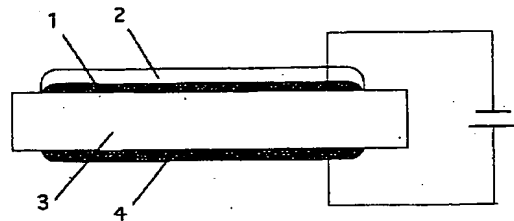
【符号の説明】

- 1 金属酸化物を含む層
- 2 カソード電極
- 3 固体電解質
- 4 アノード電極

20

*

【図1】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.